

S/N unknown

PATENT

IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

Applicant: OKUYAMA et al. Serial No.: unknown
Filed: concurrent herewith Docket No.: 10673.856US01
Title: DIELECTRIC CERAMIC COMPOSITION AND DIELECTRIC DEVICE

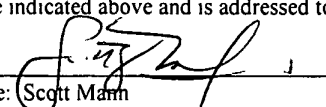
J1040 U.S. PTO
10/027620
12/19/01

CERTIFICATE UNDER 37 CFR 1.10

'Express Mail' mailing label number: EV 037641285 US

Date of Deposit: December 19, 2001

I hereby certify that this correspondence is being deposited with the United States Postal Service 'Express Mail Post Office To Addressee' service under 37 CFR 1.10 on the date indicated above and is addressed to the Assistant Commissioner for Patents, Washington, D.C. 20231.

By: 
Name: Scott Mann

SUBMISSION OF PRIORITY DOCUMENT

Assistant Commissioner for Patents
Washington, D.C. 20231


Dear Sir:

Applicants enclose herewith one certified copy of a Japanese application, Serial No. 2000-387742, filed December 20, 2000, the right of priority of which is claimed under 35 U.S.C. § 119.

Respectfully submitted,

MERCHANT & GOULD P.C.
P.O. Box 2903
Minneapolis, Minnesota 55402-0903
(612) 332-5300

Dated: December 19, 2001

By: 
Douglas P. Mueller
Reg. No. 30,300

DPM/tvm

日 本 国 特 許 庁

JAPAN PATENT OFFICE

J1040 U.S. PTO
10/027620
12/19/01

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office

出 願 年 月 日

Date of Application:

2000年12月20日

出 願 番 号

Application Number:

特願2000-387742

出 願 人

Applicant(s):

松下電器産業株式会社

CERTIFIED COPY OF
PRIORITY DOCUMENT

2001年11月16日

特許庁長官
Commissioner,
Japan Patent Office

及川耕造



【書類名】 特許願

【整理番号】 R4614

【提出日】 平成12年12月20日

【あて先】 特許庁長官 殿

【国際特許分類】 C04B 35/49
H01L 41/187

【発明者】

【住所又は居所】 大阪府門真市大字門真 1 0 0 6 番地 松下電器産業株式
会社内

【氏名】 奥山 浩二郎

【発明者】

【住所又は居所】 大阪府門真市大字門真 1 0 0 6 番地 松下電器産業株
式会社内

【氏名】 加賀田 博司

【発明者】

【住所又は居所】 大阪府門真市大字門真 1 0 0 6 番地 松下電器産業株
式会社内

【氏名】 加藤 純一

【発明者】

【住所又は居所】 大阪府門真市大字門真 1 0 0 6 番地 松下電器産業株
式会社内

【氏名】 長谷 裕之

【特許出願人】

【識別番号】 000005821

【氏名又は名称】 松下電器産業株式会社

【代理人】

【識別番号】 100095555

【弁理士】

【氏名又は名称】 池内 寛幸

【電話番号】 06-6361-9334

【選任した代理人】

【識別番号】 100076576

【弁理士】

【氏名又は名称】 佐藤 公博

【選任した代理人】

【識別番号】 100107641

【弁理士】

【氏名又は名称】 鎌田 耕一

【選任した代理人】

【識別番号】 100110397

【弁理士】

【氏名又は名称】 厩丘 圭司

【選任した代理人】

【識別番号】 100115255

【弁理士】

【氏名又は名称】 辻丸 光一郎

【選任した代理人】

【識別番号】 100115152

【弁理士】

【氏名又は名称】 黒田 茂

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 012162

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【包括委任状番号】 0004605

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 誘電体磁器組成物および誘電体デバイス

【特許請求の範囲】

【請求項1】 Zrと、Tiと、Mg、ZnおよびMnからなる群から選ばれる少なくとも一種と、NbおよびTaからなる群から選ばれる少なくとも一種との複合酸化物を第一成分として含み、第二成分としてSi、B、Al、Ba、Ca、ZnおよびLaからなる群から選ばれる少なくとも一種の酸化物を含むガラス組成物を全重量に対して25～70重量%の割合で含むことを特徴とする誘電体磁器組成物。

【請求項2】 第一成分となる複合酸化物が、組成式 $xZrO_2 - yTiO_2 - zL_{(1+u)/3}M_{(2-u)/3}O_2$ で示される請求項1に記載の誘電体磁器組成物。

ただし、LはMg、ZnおよびMnからなる群から選ばれる少なくとも一種であり、MはNbおよびTaからなる群から選ばれる少なくとも一種であり、x、y、z、u（ただし、x、y、zはモル分率）は下記式で示される範囲内の数値である。

$$x + y + z = 1$$

$$0.10 \leq x \leq 0.60$$

$$0.20 \leq y \leq 0.60$$

$$0.01 \leq z \leq 0.70$$

$$0 \leq u \leq 1.90$$

【請求項3】 第二成分が、30～60重量%のSiO₂、2～30重量%のB₂O₃、2～10重量%のAl₂O₃および20～50重量%のQOを含むガラス組成物である請求項1または2に記載の誘電体磁器組成物。

ただし、QはBaおよびCaからなる群から選ばれる少なくとも一種である。

【請求項4】 第二成分が、30～60重量%のSiO₂、2～10重量%のB₂O₃、2～10重量%のAl₂O₃、20～50重量%のQOおよび5～15重量%のLa₂O₃を含むガラス組成物である請求項1または2に記載の誘電体磁器組成物。

ただし、QはBaおよびCaからなる群から選ばれる少なくとも一種である。

【請求項 5】 第二成分が、40～60重量%の SiO_2 、2～10重量%の B_2O_3 、2～10重量%の Al_2O_3 、20～50重量%の QO および1～5重量%の ZnO を含むガラス組成物である請求項 1 または 2 に記載の誘電体磁器組成物。

ただし、 Q は Ba および Ca からなる群から選ばれる少なくとも一種である。

【請求項 6】 第一成分が、 Mg 、 Zn および Mn からなる群から選ばれる少なくとも一種と、 Nb および Ta からなる群から選ばれる少なくとも一種とが固溶置換している ZrTiO_4 相を主成分とする請求項 1～5 のいずれかに記載の誘電体磁器組成物。

【請求項 7】 第一成分において、 a/b が0.5以上1.9以下である請求項 6 に記載の誘電体磁器組成物。

ただし、 a は、 ZrTiO_4 相に固溶置換している Mg 、 Zn および Mn からなる群から選ばれる少なくとも一種のモル分率の合計であり、 b は、 ZrTiO_4 相に固溶置換している Nb および Ta からなる群から選ばれる少なくとも一種のモル分率の合計である。

【請求項 8】 請求項 1～7 のいずれかに記載の誘電体磁器組成物と、 Ag および Pd から選ばれる少なくとも一種を主成分とする導体とを含む誘電体デバイス。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、特にマイクロ波、ミリ波帯などの高周波領域における使用に適した誘電体磁器組成物および誘電体デバイスに関するものである。

【0002】

【従来の技術】

近年、マイクロ波やミリ波領域において、誘電体共振器、フィルターなどに誘電体磁器が多用されている。このような用途で使用する誘電体材料には、無負荷 Q (Q_u) 値が高く、比誘電率 (ϵ_r) が高く、共振周波数の温度係数 (τ_f) が小さくかつ任意に変化させ得るということが要求されてきた。しかし、誘電

体磁器の比誘電率が大きいほど誘電体デバイスは小さくなる。このため、通信システムの高周波化に伴って、誘電体デバイスの加工精度や導体損失を考慮し、比較的、比誘電率が小さい誘電体磁器が求められるようになってきた。

【0003】

また、誘電体磁器組成物と、Agなどの高い導電率を有する導体とを同時に焼成し、低損失で安価な誘電体積層デバイスを実現するために、950℃以下の温度で焼成できる誘電体磁器組成物が求められている。

【0004】

従来より、比誘電率が小さい誘電体磁器組成物としては、例えば特開平6-92727号公報で提案されている $MgTiO_3-CaTiO_3$ 系磁器や Al_2O_3 系磁器、および Al_2O_3 系磁器にガラス組成物を添加した磁器組成物などが知られている。

【0005】

【発明が解決しようとする課題】

しかしながら、 $MgTiO_3-CaTiO_3$ 系磁器は、誘電特性は比較的良好であるが、950℃以下の温度では焼成できない。 Al_2O_3 系磁器は、 Q_u 値が高く、 ϵ_r も10程度と小さいが、 τ_f が大きく、950℃以下の温度で焼成することもできない。 Al_2O_3 系磁器にガラス組成物を添加した磁器組成物は、 τ_f が大き過ぎる。

【0006】

そこで、本発明は、無負荷 Q (Q_u) 値が高く、比誘電率 (ϵ_r) が10～20程度であって、共振周波数の温度係数 (τ_f) の絶対値が小さく、かつ950℃以下の温度で焼成できる誘電体磁器組成物を提供することを目的とする。また、本発明の別の目的は、マイクロ波やミリ波帯などの高周波領域での使用に適した、低損失で安価な誘電体デバイスを提供することにある。

【0007】

【課題を解決するための手段】

上記目的を達成するために、本発明の誘電体磁器組成物は、Zrと、Tiと、Mg、ZnおよびMnからなる群から選ばれる少なくとも一種と、NbおよびT

a からなる群から選ばれる少なくとも一種との複合酸化物を第一成分として含み、第二成分として Si および B からなる群から選ばれる少なくとも一種の酸化物を含むガラス組成物を全重量に対して 25～70 重量%の割合で含むことを特徴とする。

【0008】

上記誘電体磁器組成物は、組成式 $xZrO_2 - yTiO_2 - zL_{(1+u)/3}M_{(2-u)/3}O_2$ で示されることが好ましい。ただし、L は Mg, Zn および Mn からなる群から選ばれる少なくとも一種であり、M は Nb および Ta からなる群から選ばれる少なくとも一種であり、x, y, z, u (ただし、x, y, z はモル分率) が下記式で示される範囲内の数値である。

$$x + y + z = 1$$

$$0.10 \leq x \leq 0.60$$

$$0.20 \leq y \leq 0.60$$

$$0.01 \leq z \leq 0.70$$

$$0 \leq u \leq 1.90$$

なお、u は正の数 ($u > 0$) が好適であり、第二成分は、Si および B から選ばれる少なくとも一種の酸化物を含むガラス組成物が好適である。

【0009】

上記第1および第2の誘電体磁器組成物によれば、Qu 値を高く、 ϵ_r を 10～20 程度とし、 τ_f の絶対値を小さくすることができる。また、950℃以下の温度で焼成できる。

【0010】

第二成分としては、30～60 重量%の SiO_2 、2～30 重量%の B_2O_3 、2～10 重量%の Al_2O_3 および 20～50 重量%の QO を含むガラス組成物が好適である。第二成分の別の好ましい例は、30～60 重量%の SiO_2 、2～10 重量%の B_2O_3 、2～10 重量%の Al_2O_3 、20～50 重量%の QO および 5～15 重量%の La_2O_3 を含むガラス組成物である。第二成分のまた別の好ましい例は、40～60 重量%の SiO_2 、2～10 重量%の B_2O_3 、2～10 重量%の Al_2O_3 、20～50 重量%の QO および 1～5 重量%の ZnO を含む

ガラス組成物である。上記において、QはBaおよびCaからなる群から選ばれる少なくとも一種である。

【0011】

一方、第一成分は、Mg、ZnおよびMnからなる群から選ばれる少なくとも一種と、NbおよびTaからなる群から選ばれる少なくとも一種とが固溶置換している $ZrTiO_4$ 相を主成分とすることが好ましい。なお、本明細書において、主成分とは50重量%以上を占める成分をいう。また、第一成分では、 a/b が0.5以上1.9以下であるとよい。ただし、aは、 $ZrTiO_4$ 相に固溶置換しているMg、ZnおよびMnからなる群から選ばれる少なくとも一種のモル分率の合計であり、bは、 $ZrTiO_4$ 相に固溶置換しているNbおよびTaからなる群から選ばれる少なくとも一種のモル分率の合計である。

【0012】

本発明の誘電体デバイスは、上記記載のいずれかの誘電体磁器組成物と、AgおよびPdから選ばれる少なくとも一種を主成分とする導体とを含むことを特徴とする。本発明の誘電体デバイスは、マイクロ波やミリ波帯などの高周波領域での使用に適した、低損失で安価なデバイスとすることができる。

【0013】

【発明の実施の形態】

以下、本発明の好ましい実施形態について説明する。

本発明の誘電体磁器組成物では、第二成分の含有量は、全重量に対して25～70重量%の範囲である。第二成分の含有率を上記範囲外とすると、950℃以下の温度で焼成できないか、または高いQ値が得られないからである。第二成分の含有率は、35～60重量%の範囲が好ましい。

【0014】

第二成分の好ましい具体例を以下に挙げる。

- ① 30～60重量%の SiO_2 、2～30重量%の B_2O_3 、2～10重量%の Al_2O_3 、20～50重量%のQOからなるガラス組成物
- ② 30～60重量%の SiO_2 、2～10重量%の B_2O_3 、2～10重量%の Al_2O_3 、20～50重量%のQO、5～15重量%の La_2O_3 からなるガラス組

成物

③ 40～60重量%の SiO_2 、2～10重量%の B_2O_3 、2～10重量%の Al_2O_3 、20～50重量%の QO 、1～5重量%の ZnO からなるガラス組成物

ここで、 Q は、上記と同様、 Ba および Ca からなる群から選ばれる少なくとも一種である。第二成分を上記範囲外とすると、ガラス化しないか、吸湿性が高くなり過ぎる場合がある。

【0015】

第一成分は、組成式： $x\text{ZrO}_2 - y\text{TiO}_2 - z\text{L}_{(1+u)/3}\text{M}_{(2-u)/3}\text{O}_2$ (L は Mg 、 Zn および Mn からなる群から選ばれる少なくとも一種、 M は Nb および Ta からなる群から選ばれる少なくとも一種、 x 、 y 、 z および u は、それぞれ、 $x+y+z=1$ 、 $0.10 \leq x \leq 0.60$ 、 $0.20 \leq y \leq 0.60$ 、 $0.01 \leq z \leq 0.70$ 、 $0 \leq u \leq 1.90$ で示される数値)であることが好ましい。

【0016】

x 、 y 、 z および u が上記範囲外にあると高い Qu 値が得られない。 x 、 y および z は、それぞれ、 $0.20 \leq x \leq 0.50$ 、 $0.30 \leq y \leq 0.60$ 、 $0.05 \leq z \leq 0.30$ を満たすことがさらに好ましい。

【0017】

第一成分は、上記元素 L と上記元素 M とが固溶置換している ZrTiO_4 相を主成分とし、かつ a/b (ただし、 a および b は、それぞれ元素 L と元素 M のモル分率の合計である)が0.5以上1.9以下であると特に好ましい。

【0018】

誘電体磁器の出発原料としては、特に制限されず、各成分元素の酸化物、炭酸塩、水酸化物、塩化物、アルコキシドなどを用いればよい。原料粉体の混合方法としては、ボールミル中で水または有機溶媒と共に混合する湿式混合法、ミキサーなどで混合したり溶媒を用いないボールミル中で混合する乾式混合法などを用いればよい。また、出発原料に応じて、アルコキシド法や共沈法を用いてもよい。混合方法の中では、工程が比較的複雑でないこと、均質な混合物を得やすいことなどから、溶媒を用いてボールミル中で混合する方法が好ましい。なお、粉体

の分散性を高めるために分散剤を用いたり pH 調整を行ってもよい。

【0019】

混合物の仮焼は、組成により異なるが、通常、700～1300℃程度で1～8時間程度とすればよい。ガラス化が必要な場合には、加熱して溶融した混合物を急冷すればよい。急冷は、溶融混合物を水中に滴下したり、金属板に滴下することにより行うことができる。仮焼物またはガラス化物の粉碎方法としては、ボールミル、高速回転式粉碎机、媒体攪拌ミル、気流粉碎机などを用いる方法があるが、いずれを用いてもよい。

【0020】

成形には、通常、プレス成形が適用される。特に限定されないが、プレス成形における圧力は、50～200MPa（約0.5～2ton/cm²）程度が好適である。成形の際に用いるバインダーとしては、セラミックスの成形の際に用いられるバインダーであれば特に制限はないが、例えば、ポリビニルアルコール系バインダー、ポリビニルブチラル系バインダー、アクリル樹脂系バインダー、ワックス系バインダーなどが挙げられる。バインダーの使用量も特に制限されないが、通常、固形分換算で全体の0.05～1重量%程度が好適である。

【0021】

焼成は、特に限定されないが、400～700℃程度で1～24時間程度加熱してバインダーを除去した後、800～950℃程度で2～100時間程度焼成するとよい。

【0022】

【実施例】

以下、実施例により本発明をさらに詳細に説明するが、本発明は以下の実施例に限定されるものではない。

【0023】

第一成分の出発原料として、ZrO₂、TiO₂、MgO、ZnO、Nb₂O₅、Ta₂O₅、Mn₃O₄を用意し、これらを所定の組成になるよう秤量し、ボールミルを用いてエタノールとともに湿式混合した。粉体とエタノールとの体積比は約2：3とした。この混合物をボールミルから取り出して、120℃で乾燥させた

後、空気中において 1250°C の温度で 2 時間仮焼し、誘電体結晶粉末（第一成分）を得た。

【0024】

第二成分の出発原料として、 SiO_2 、 B_2O_3 、 Al_2O_3 、 BaCO_3 、 CaCO_3 、 ZnO 、 La_2O_3 を用い、これらを所定の組成になるよう秤量し、ボールミルを用いてエタノールとともに湿式混合した。粉体とエタノールとの体積比は約 2 : 3 とした。この混合物をボールミルから取り出して、 120°C で乾燥させた。さらに、乾燥物を白金製のつぼに入れ、空気中において 1300°C の温度で溶融させた後、溶融物を水中に滴下し、急冷した。得られたガラスを混合と同様の方法で粉砕し、乾燥させ、ガラス粉末（第二成分）を得た。

【0025】

誘電体粉末（第一成分）とガラス粉末（第二成分）とを所定の割合で配合し、エタノールとともに上記ボールミル中で湿式粉砕した。粉砕泥しょうをボールミルから取り出して乾燥させた後、粉末にバインダーとして濃度 6 % のポリビニールアルコール溶液を 8 重量 % 添加して混合して均質化し、32 メッシュのふるいを通して整粒した。整粒粉体は金型と油圧プレスを用い、成形圧力 127.4 MPa （約 1.3 ton/cm^2 ）で直径 13 mm、厚さ約 6 mm の円板に成形した。この成形体を高純度のマグネシアさや鉢の中に入れ、空気中において 500°C の温度で 4 時間保持してバインダーアウトを行なった後、空気中において $800 \sim 950^{\circ}\text{C}$ の温度で 4 時間保持して焼成し、誘電体磁器を得た。

【0026】

誘電体磁器の電気的特性の評価には、ネットワークアナライザを用い、導体空洞型誘電体円柱共振器法による測定から、 Qf 値（ Qu 値と共振周波数との積）と比誘電率（ ϵ_r ）を求めた。共振周波数の温度係数（ τ_f ）は -25°C から 85°C の範囲で求めた。なお、共振周波数は $6 \sim 13\text{ GHz}$ の範囲であった。

【0027】

作製した第二成分の組成と状態を表 1 に、得られた誘電体磁器組成物の組成を表 2 に示す。また、電気的特性を表 3 に示す。なお、表 2 および表 3 において * 印を付した試料は比較例である。

【0028】

(表1)

試料	ガラス組成 (重量%)							ガラス の状態
	SiO ₂	B ₂ O ₃	Al ₂ O ₃	BaO	CaO	ZnO	La ₂ O ₃	
e	78	1	1	5	5	8	2	ガラス化せず
f	10	40	15				35	吸湿性あり
g	15	15		60		10		ガラス化せず
h	30	30	10	15	15			良好
i	60	2	2	36				良好
j	40	5	5	25	25			良好
k	50	20	10	20				良好
l	60	10	2	20			8	良好
m	30	10	5	25	25		5	良好
n	43	2	10	30			15	良好
p	44	5	6	35			10	良好
q	60	10	2	13	10	5		良好
r	40	2	7	35	15	1		良好
s	55	10	10	20		5		良好
t	50	5	5	25	13	2		良好

【0029】

(表 2)

試料	第一成分						第二成分	
	L	M	x	y	z	u	試料	含有量 (重量%)
*1	Mg	Nb	0.400	0.150	0.450	0	p	40
2	Mg	Nb	0.200	0.200	0.600	0	p	40
3	Mg	Nb	0.450	0.200	0.350	0	p	40
4	Mg	Nb	0.200	0.600	0.200	0	p	40
5	Zn	Nb	0.200	0.600	0.200	0	p	40
*6	Mg	Nb	0.150	0.700	0.150	0	p	40
7	Mg	Nb	0.100	0.200	0.700	0	p	40
*8			0.550	0.450	0	0	p	40
9	Mg	Nb	0.490	0.500	0.010	0	p	40
10	Zn	Nb	0.490	0.500	0.010	0	p	40
11	Mg	Nb	0.350	0.450	0.200	0	p	40
12	Mg _{9/10} Mn _{1/10}	Nb	0.340	0.520	0.140	0	p	40
13	Zn _{9/10} Mn _{1/10}	Nb	0.340	0.520	0.140	0	p	40
14	Mn	Nb	0.340	0.520	0.140	0	p	40
15	Mg _{9/10} Mn _{1/10}	Ta	0.340	0.520	0.140	0	p	40
16	Mg _{9/10} Mn _{1/10}	Nb _{1/2} Ta _{1/2}	0.340	0.520	0.140	0	p	40
17	Mg _{9/10} Mn _{1/10}	Nb	0.340	0.520	0.140	0.1	p	40
18	Mg _{9/10}	Nb	0.340	0.520	0.140	0.96	p	40

	Mn _{1/10}							
19	Mg _{9/10}	Nb	0.340	0.520	0.140	1.9	p	40
	Mn _{1/10}							
*20	Mg _{9/10}	Nb	0.340	0.520	0.140	4.0	p	40
	Mn _{1/10}							
*21	Mg	Nb	0.650	0.200	0.100	0	p	40
22	Mg	Nb	0.600	0.300	0.100	0	p	40
*23	Mg	Nb	0.050	0.500	0.450	0	p	40
*24	Mg _{9/10}	Nb	0.360	0.540	0.100	0.1	p	15
	Mn _{1/10}							
25	Mg _{9/10}	Nb	0.360	0.540	0.100	0.1	p	25
	Mn _{1/10}							
26	Mg _{9/10}	Nb	0.360	0.540	0.100	0.1	p	35
	Mn _{1/10}							
27	Mg _{9/10}	Nb	0.360	0.540	0.100	0.1	p	43
	Mn _{1/10}							
28	Mg _{9/10}	Nb	0.360	0.540	0.100	0.1	p	60
	Mn _{1/10}							
29	Mg _{9/10}	Nb	0.360	0.540	0.100	0.1	p	70
	Mn _{1/10}							
*30	Mg _{9/10}	Nb	0.360	0.540	0.100	0.1	p	90
	Mn _{1/10}							
31	Mg _{9/10}	Nb	0.360	0.540	0.100	0.1	h	43
	Mn _{1/10}							
32	Mg _{9/10}	Nb	0.360	0.540	0.100	0.1	i	43
	Mn _{1/10}							
33	Mg _{9/10}	Nb	0.360	0.540	0.100	0.1	j	43
	Mn _{1/10}							
34	Mg _{9/10}	Nb	0.360	0.540	0.100	0.1	k	35

	Mn _{1/10}							
35	Mg _{9/10}	Nb	0.360	0.540	0.100	0.1	k	43
	Mn _{1/10}							
36	Mg _{9/10}	Nb	0.360	0.540	0.100	0.1	k	60
	Mn _{1/10}							
37	Mg _{9/10}	Nb	0.360	0.540	0.100	0.1	l	43
	Mn _{1/10}							
38	Mg _{9/10}	Nb	0.360	0.540	0.100	0.1	m	43
	Mn _{1/10}							
39	Mg _{9/10}	Nb	0.360	0.540	0.100	0.1	n	43
	Mn _{1/10}							
40	Mg _{9/10}	Nb	0.360	0.540	0.100	0.1	q	43
	Mn _{1/10}							
41	Mg _{9/10}	Nb	0.360	0.540	0.100	0.1	r	43
	Mn _{1/10}							
42	Mg _{9/10}	Nb	0.360	0.540	0.100	0.1	s	43
	Mn _{1/10}							
43	Mg _{9/10}	Nb	0.360	0.540	0.100	0.1	t	35
	Mn _{1/10}							
44	Mg _{9/10}	Nb	0.360	0.540	0.100	0.1	t	43
	Mn _{1/10}							
45	Mg _{9/10}	Nb	0.360	0.540	0.100	0.1	t	60
	Mn _{1/10}							

・ x、y、z、uは、第一成分を組成式： $xZrO_2 - yTiO_2 - zL_{(1+u)/3}M_{(2-u)/3}O_2$ （L、Mは上記記載のとおり）により示したときの数値である。
 ・ L、Mとして複数の元素が示されている場合、元素の比率はモル分率による。

【0030】

(表 3)

試料 番号	焼成温度 (°C)	Q f (GHz)	αf	τf (ppm/°C)
*1	950	測定不可		
2	950	4000	12.3	-40
3	950	4500	16.2	12
4	900	4200	19.8	38
5	850	4300	18.5	29
*6	900	950	32.2	67
7	950	4900	10.8	-38
*8	950	800	18.8	78
9	900	4000	18.5	37
10	900	4200	16.9	23
11	900	6000	17.2	16
12	900	9500	18.0	5
13	850	8600	16.9	-3
14	850	6200	15.2	25
15	900	9900	16.7	1
16	900	11000	17.8	2
17	900	13600	17.5	-2
18	900	10900	15.3	-12
19	950	6800	14.1	-25
*20	950	650	11.3	-56
*21	950	測定不可		
22	950	4200	14.6	36
*23	950	360	15.9	54
*24	950	測定不可		

25	950	6000	12.3	29
26	950	12000	16.4	12
27	900	14200	17.6	2
28	850	12300	15.0	-8
29	800	8500	12.4	18
*30	800	670	9.8	32
31	950	6800	16.5	25
32	950	6000	15.8	13
33	950	6300	16.1	10
34	950	8100	15.8	21
35	900	10600	18.4	7
36	850	7400	13.4	-9
37	900	9500	16.9	16
38	900	8400	16.3	7
39	900	7500	16.5	12
40	950	6300	15.2	29
41	950	7400	16.0	16
42	950	8500	16.3	9
43	950	9500	15.9	22
44	900	11200	17.5	6
45	850	10000	15.9	-8

【 0 0 3 1 】

表3に示すように、*印を付した例以外の試料では、4000以上の高いQf値、10～20程度の ϵ_r 、絶対値で40ppm/℃以下の小さな τ_f を得ることができた。また、この高い電気的特性を、950℃以下という低い焼成温度で得ることができた。一方、*印を付した試料では、焼結できず、特性が測定できないか、焼結しても、上記特性(Qf値、 ϵ_r 、 τ_f)の少なくとも一つが上記範囲外となった。特にQf値は大幅に低下した。

【0032】

*印を付した例以外の試料では、粉末X線回折により、 $ZrTiO_4$ 相が確認された。また、 $ZrTiO_4$ 相を主成分とする誘電体磁器の破断面および研磨面の局所X線回折装置による組成分析により、単一結晶粒内にZr, Ti, 元素Lおよび元素Mの全てが存在することが確認された。さらに、その組成比は、同一誘電体磁器内において主相を構成する各結晶粒において実質的に同一であった。単一結晶粒内に、配合した全てのLおよびMが存在することも確認された。また、主相を構成する結晶粒内にZr, Ti, L, M各元素が存在する誘電体磁器では、同一焼成条件で得られた $ZrTiO_4$ 磁器と比較して格子定数が大きくなっていることが確認された。これらのことより、 $ZrTiO_4$ 相にL, M両元素が固溶置換していることが確認された。

【0033】

このような誘電体磁器のうち、前述したLとMとのモル分率の比 a/b が0.5以上1.9以下である誘電体磁器（試料番号11~18, 25~29, 31~45; 上記局所X線回折装置により定量）では、6000以上のさらに高いQf値を示すことが確認できた。

【0034】

また、試料番号16, 27および44と同様の誘電体磁器組成物およびAgペーストを用い、図1に示すような積層型誘電体フィルタを作製した。この誘電体フィルタ1は、図2に示したように、内部電極4a, 4b, 4c, 4d, 4e, 4f, 4gとしてAgペーストを塗布した誘電体磁器組成物からなる未焼成シート3a, 3b, 3c, 3d, 3e（上記と同様にして作製した成形体）を積層し、さらに端子電極2a, 2b, 2c, 2dとしてAgペーストを塗布して焼成して得たものである。焼成条件も上記と同様とした。

【0035】

この誘電体フィルタの性能を評価したところ、従来の誘電体フィルタ（ Al_2O_3 にガラス組成物添加）と比較して、挿入損失が1/2であった。また、中心周波数（5GHz）の温度係数はおよそ1/10であった。以上より、この誘電体デバイスが、マイクロ波やミリ波帯などの高周波領域での使用に適した、低損

失な誘電体デバイスとして使用できることが確認された。この積層型誘電体デバイスは、上記のように、誘電体磁器組成物と A g ペーストなどの電極材料とを同時に焼成することにより作製できるため、極めて効率良く製造できる。

【 0 0 3 6 】

【発明の効果】

本発明によれば、 Q_u 値が高く、 ϵ_r が 1 0 ～ 2 0 程度であり、 τ_f の絶対値が小さく、かつ、9 5 0 ℃以下の温度で焼成できる誘電体磁器組成物を提供できる。また、マイクロ波やミリ波帯などの高周波領域での使用に適した、低損失で安価な誘電体デバイスを提供できる。

【図面の簡単な説明】

【図 1】 本発明の誘電体デバイスの一例の斜視図である。

【図 2】 本発明の誘電体デバイスの一例の内部電極構造を示す斜視図である。

【符号の説明】

1 誘電体フィルタ

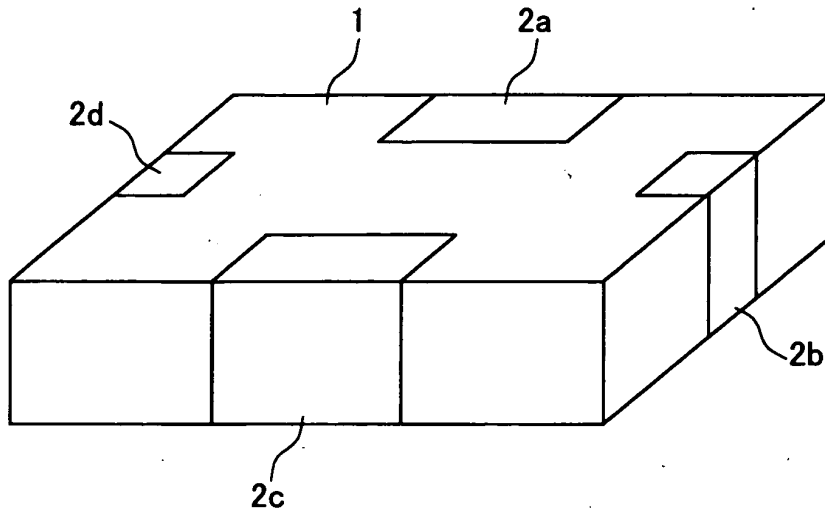
2 a, 2 b, 2 c, 2 d 端子電極

3 a, 3 b, 3 c, 3 d, 3 e 誘電体（未焼成成形体）

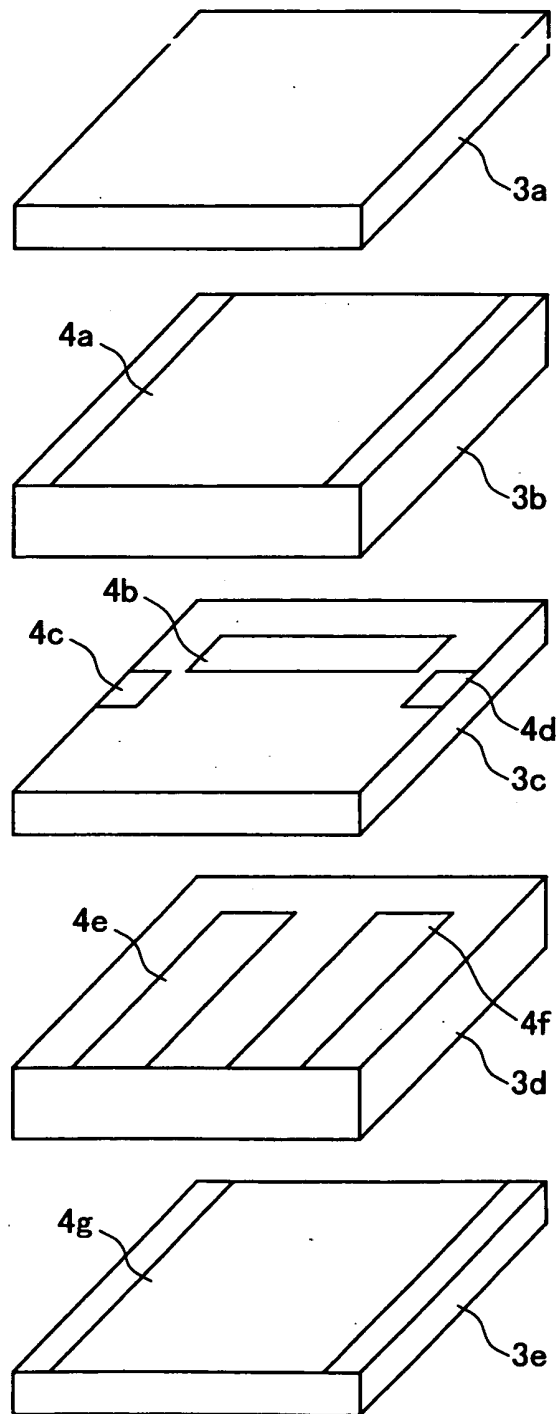
4 a, 4 b, 4 c, 4 d, 4 e, 4 f, 4 g 内部電極

【書類名】 図面

【図 1】



【図 2】



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 マイクロ波やミリ波帯などの高周波領域での使用に適し、無負荷 Q (Q_u) 値が高く比誘電率 ϵ_r が10～20程度で共振周波数の温度係数 τ_f の絶対値が小さく、950℃以下で焼成できる誘電体磁器組成物を提供する。

【解決手段】 組成式： $xZrO_2 - yTiO_2 - zL_{(1+u)/3}M_{(2-u)/3}O_2$ (L は Mg , Zn および Mn から選ばれる少なくとも一種、 M は Nb および Ta から選ばれる少なくとも一種、 x, y, z はモル分率で $x + y + z = 1$ 、 $0.10 \leq x \leq 0.60$ 、 $0.20 \leq y \leq 0.60$ 、 $0.01 \leq z \leq 0.70$ を満たす数値、 $0 \leq u \leq 1.90$) で示される複合酸化物を第一成分として含み、第二成分として Si , B , Al , Ba , Ca , Zn および La から選ばれる少なくとも一種の酸化物を含むガラス組成物を全重量に対して25～70重量%の割合で含む誘電体磁器組成物とする。

【選択図】 図1

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [000005821]

1. 変更年月日 1990年 8月28日
[変更理由] 新規登録
住 所 大阪府門真市大字門真1006番地
氏 名 松下電器産業株式会社